

ナノ構造体を用いたパターン媒体の研究

著者	安居 伸浩
号	53
学位授与番号	4027
URL	http://hdl.handle.net/10097/42441

		やす い のぶ ひろ	
氏 名	安 居 伸 浩		
授 与 学 位	博 士 (工 学)		
学 位 授 与 年 月 日	平成20年9月11日		
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項		
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 電気・通信工学専攻		
学 位 論 文 題 目	ナノ構造体を用いたパターン媒体の研究		
指 導 教 員	東北大学教授 村岡 裕明		
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 村岡 裕明	東北大学教授 高橋 研	
	東北大学教授 佐橋 政司		

論文内容要旨

情報化社会の急速な進展に伴い、ハード磁気ディスク装置の高密度化が求められている中、本論文は高密度磁気記録のための次世代方式である垂直パターン媒体の高密度化の研究であり、ナノ構造体を用いて 1Tbits/inch² という高密度な媒体作製の可能性とその課題を示し、全7章よりなる。

第1章は序論として、本研究の背景と目的を述べ、汎用リソグラフィー技術の加工分解能より微細なパターン形成には、規則配列を有するナノ構造体を用いることが必要であるとした。

第2章では、自己組織化により微細規則配列を形成できる材料系を検討し、非平衡開放系でナノサイズの構造が実現できる手法として、アルミニウム膜に溶液中で電位差を与えてポーラス膜を形成する陽極酸化法と無機材料が成膜時に相分離して得られる無機ナノ相分離法が有効であることを示し、垂直パターン媒体への適用において課題となる部分を明らかにした。

第3章では、アルミニウム膜から陽極酸化法で得られる構造体について詳細に検討した。その結果、アルミニウム膜の表面ラフネスが FIB による開始点形成深さ約 1nm に対して 4.95nm と大きいことが原因であることが判明した。そこで、ポーラス膜である陽極酸化アルミナナノホールの規則配列の高密度化において、アルミニウム膜平坦化のためにパルブ金属との合金化を検討し、AlHf 合金と AlTi 合金が表面ラフネス低減に好ましいことを明らかにした。その結果、約 1nm の窪み深さしかない開始点形成済みアルミニウム合金膜から、Fig. 1 に示すように最大 1.86Tdots/inch² (ハニカム配列で 20nm 周期に相当) の高密度規則配列の形成が可能であることを示した。続いて、ポーラス膜に磁性材料を付与する場合にメッキ法が有効な手段であるため、従来明らかになっていなかった陽極酸化アルミナナノホール底部と下地層との界面の状態を調べた。その結果、下地層の種類により、酸化物形成型 (W, Ta, Hf, Nb, Zr, Ti など) と貫通型 (Au, Pt, Pd, Ag, Cu, Si, ITO など) の 2 種類に分類できることを明らかにし、特に貫通型では充填物の結晶配向を下地層の結晶面にて制御可能とする構成になることを示した。さらに、一歩進んだ構造形成について実証を行い、Fig. 2 に示すようなプロセスによってポーラス構造から突起構造の形成を可能にした。まず、ニオブ下地層を有する開始点を施した AlHf 合金を硫酸水溶液中にて陽極酸化して通常のポーラス膜を形成する。その後、さらに中性であるホウ酸アンモニウム水溶液中にて再度陽極酸化を実行すると、下地層であるニオブの酸化物がホール内を競り上がって突起物を形成することを見出した。また、この現象は酸化物形成型の下地層

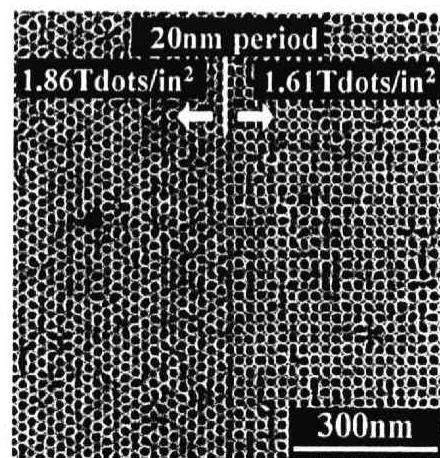


Fig. 1 20nm 周期の窪み形成を経て得られた陽極酸化アルミナナノホールの SEM 像

(Nb, Ta, W など)で有効であり、特にニオブで良好な結果を示した。この構造形成後に、陽極酸化アルミナ部分をリン酸等でケミカルエッチングすれば細孔の高密度規則配列だけでなく、Fig. 2(d')のように突起構造の規則配列の形成も可能である。よって、垂直パターン媒体の形態において、従来のように陽極酸化アルミナナノホールを細孔構造+磁性材料充填に用いるだけでなく、突起構造+磁性材料被覆に対応した作製プロセスにも適用できることを示した。

第4章では、無機ナノ相分離膜における規則構造の形成プロセスを検討し、無数の材料系で相分離構造を示すことを明らかにした。また、それらの系が有する平衡状態図における共晶温度

と相分離構造の周期に相関があることを見出した。そして、一連の相分離構造を示す系の中から $\text{Pd}_2\text{Si-Si}$ 系を取り上げて詳細に調べ、Fig. 3 に示すように平面及び断面からの高分解能 TEM 像から規則配列の均一性が高いことを確認すると共に、 Pd_2Si ドットが結晶化しておりマトリックスの $\alpha\text{-Si}$ との界面も明瞭であることを示した。また、 Pd_2Si ドットの直径が約 4nm に対して $\alpha\text{-Si}$ の肉厚は約 2nm であることから、20Tdots/inch² を超えるドット密度を達成している。これは、陽極酸化法で得られるナノ構造体(約 2Tdots/inch²)を上回る高密度化を可能にする結果である。さらに、Cahn-Hilliard 方程式に物質の流入と排出を表す移流項を追加した方程式の時間発展的なシミュレーションにより、 $\text{Pd}_2\text{Si-Si}$ 系が示す相分離構造の組成依存性を的確に表現できることを示した。

第5章では、無機ナノ構造体を用いた垂直パターン媒体の作製法について述べた。ポラス構造+磁性材料充填という形態と突起構造+磁性材料被覆という形態の2種類について詳細に検討した。まず、ポラス構造として Cu 下地層を有する貫通型の陽極酸化アルミナナノホールを用いた場合、ホール底部に Cu(111)面が露出していることによってメッキ法にて充填した hcp-Co の c 軸を基板垂直方向に配向させることが可能であることを明らかにした。さらに、高磁気異方性材料である $L1_0\text{-CoPt}$ の充填とその c 軸配向制御が可能であることを示した。しかしながら、記録層となる充填層の薄膜化(～25nm)においてその優れた磁気特性が維持できない問題点が顕在化した。そして、その問題点が熱処理による $\text{Co}_{50}\text{Pt}_{50}$ の規則合金化が進行し難いことと、メッキ法による充填後にホールから溢れた部分に対する研磨により規則合金相が消失することにあることを明らかにした。その一方で、突起構造を用いた場合には、 $\text{hcp-Co}_{70}\text{Pt}_{30}(5\text{nm})/\text{Ru}(5\text{nm})/\text{Pt}(3\text{nm})/\text{Ti}(1\text{nm})$ の

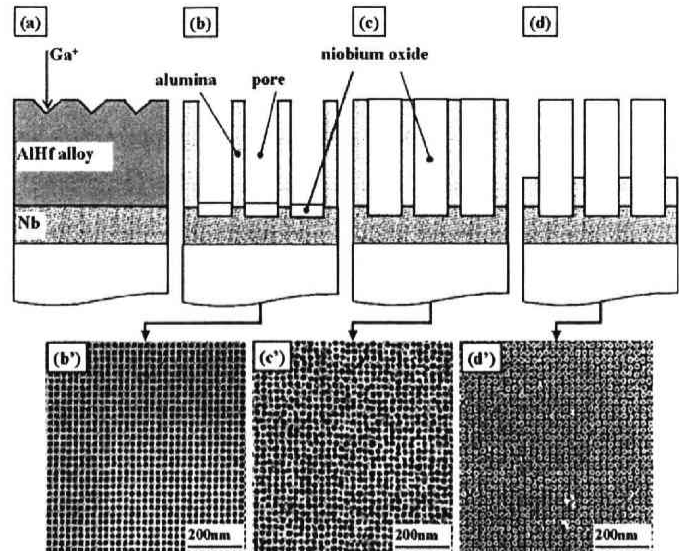


Fig. 2 突起構造形成プロセスを示す断面からの模式図と対応する平面 SEM 像(25nm 周期の試料)

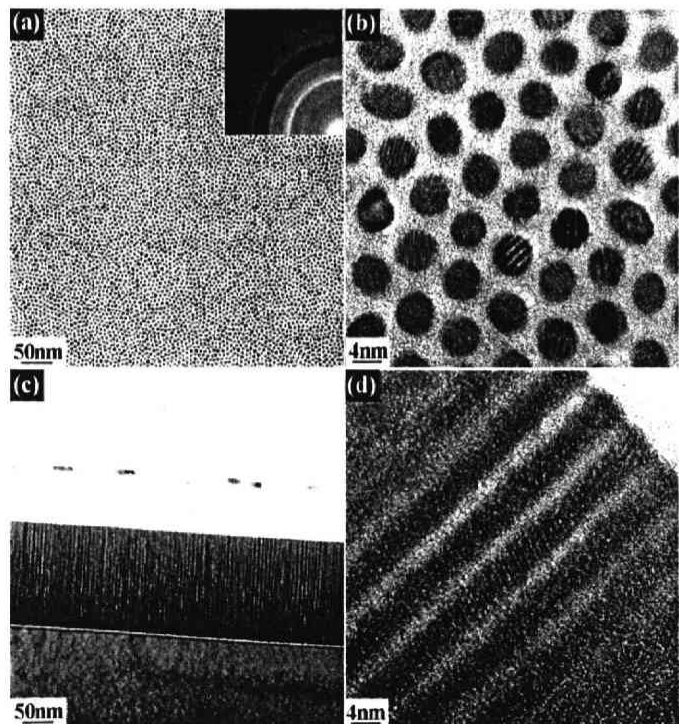


Fig. 3 (a), (b) $\text{Pd}_2\text{Si-Si}$ 系の平面 TEM 像と(c), (d) 断面 TEM 像

被覆が最適であることを見出し、軟磁性層を有する 65nm 周期 ($153\text{Gdots}/\text{inch}^2$) と 25nm 周期 ($1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$) の突起構造に上記磁性膜を被覆した 2 層垂直パターン媒体の作製を可能にした。Fig. 4 に示すのは、 $1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$ 媒体の断面 TEM 像である。そして、約 $1\text{Tdots}/\text{inch}^2$ の媒体では垂直磁気異方性を有していることは確認できたが、突起上と溝部分の両方に磁性材料が存在し、各々を区別して磁気特性を評価することが不可能なため、高分解 TEM 像により突起上磁性材料の結晶配向の確認を試みた。そして、Fig. 4(b) に示すように突起上に被覆された *hcp*-CoPt 層の格子像の FFT 解析から CoPt 部分が突起上面垂直方向に *c* 軸配向していることを明らかにし、突起上の磁性体も垂直磁気異方性を有していることを間接的に示した。よって、突起間の溝部分に不要

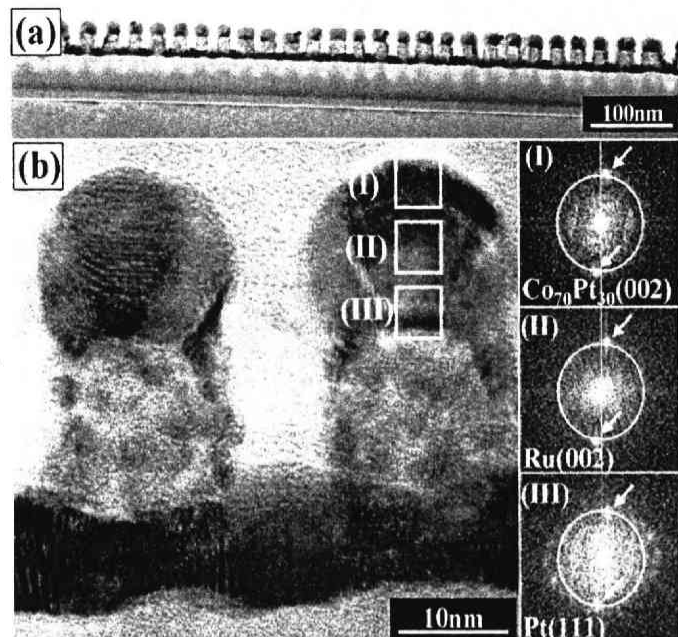


Fig. 4 25nm 周期 ($1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$) の垂直パターン媒体の (a) 低倍 TEM 像と (b) 高分解能 TEM 像と突起上の (I) CoPt, (II) Ru, (III) Pt 層の FFT 像

な磁性材料が停滞しているという懸念は残されているが、実際に記録再生を実施できる媒体構成を実現した

第 6 章では、作製した 2 層垂直パターン媒体の記録再生を試みた。直径 1 インチの媒体内には、 $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ の規則パターン領域が形成されている。まず、 $153\text{Gdots}/\text{inch}^2$ (65nm 周期) の媒体においては、フライング記録再生において、個々のドットからの信号が観測された。そして、規則配列領域にある 127 個のドットからの再生波形に 127 個のピークが観測されたことにより、主に突起上の磁性体部分からの信号をしっかりと再生していることが確認できた。さらに、 $1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$ (25nm 周期) の媒体では、フライング記録再生においては、1 ライン毎 (1 ドット列) の記録再生は達成されなかった。しかしながら、コンタクト記録再生においては、1 ライン毎に磁化が反転するような記録に対して、Fig. 5 の一番下の再生波形のように 1 ライン毎に磁化反転している領域が観測され、この垂直パターン媒体がコンタクト記録再生において $1\text{Tbits}/\text{inch}^2$ の可能性を有するというを示した。評価全体を通して得られた知見から考察すると、 $1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$ 媒体のフライング記録再生の失敗は、媒体への記録が不完全であることが原因である可能性が高いと考えられる。したがって、

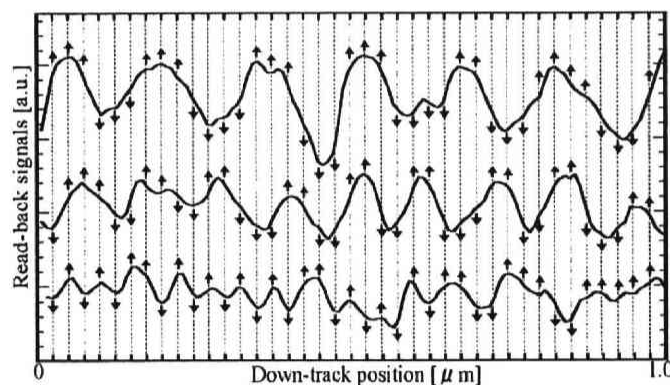


Fig. 5 $1.03\text{Tdots}/\text{inch}^2$ (25nm 周期) 媒体のコンタクト記録再生時の再生波形 (上から 3 ライン、2 ライン、1 ライン毎の記録再生)

記録層底面と軟磁性層上面間の距離 79nm をさらに低減することが重要と思われる。また、2 層垂直パターン媒体として、突起構造 + 磁性材料被覆という形態が最終的に使用可能なものかを判断するために、突起周辺の溝にある磁性体の再生信号への影響を精査することが今後の課題となってくるはずである。

第 7 章は結論であり、新たにナノ構造体の制御技術を見出し、それらを垂直パターン媒体に用いることで、今まで実現できていなかった $1\text{Tdots}/\text{inch}^2$ の媒体作製を達成し、 $1\text{Tbits}/\text{inch}^2$ という高密度記録の可能性を示した。

論文審査結果の要旨

情報化社会の急速な進展に伴い、大容量情報を蓄積・再生するハード磁気ディスク装置の更なる高密度化が求められている。著者は、 1 Tbit/inch^2 以上（ビット長 25 nm 以下）の記録密度を目指して、記録層をビットごとに加工形成するパターン媒体について詳細な研究を行った。ビット長が汎用リソグラフィ技術の加工分解能より微細なため、規則的な配列を自己組織化により形成できるナノ構造体に着目して高密度垂直パターン媒体を実際に作製し、磁気ヘッドを用いた記録再生特性の実測を通じて 1 Tbit/inch^2 の高い面記録密度の可能性を明らかにした。本論文はその成果をまとめたもので、全文7章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第2章では、自己組織化により微細規則配列を形成できるテンプレート材料系及びその上に継続した成膜が可能となる非平衡開放系でナノサイズの微細構造が実現できる手法として、溶液中で電位差を与えた Al 膜表面に微細孔が形成される陽極酸化法と2つの無機材料が成膜時に相分離しナノサイズ構造を形成する無機ナノ相分離法が有効であることを示した。

第3章では、陽極酸化法による微細孔形成プロセスについて具体的に述べている。前処理として、深さ 1 nm 程度の浅い窪みを FIB（収束イオンビーム）によって人為的に形成することで規則配列した高密度微細孔の形成に成功している。さらに、Al に Ti あるいは Hf を添加することで表面の平坦性を改善しパターン媒体として世界最先端の 1.86 Tdot/inch^2 の極めて高い規則構造密度を達成している。これは実用上有用な成果である。

第4章では、無機ナノ相分離膜における規則構造の形成プロセスを検討している。著者が新たに確立した $\text{Pd}_2\text{Si-Si}$ 系の相分離構造を用いることにより、優れた規則配列性を持つ 10 Tdot/inch^2 を超える面密度での微細孔の形成が可能であることを明らかにしている。さらに、相互拡散と相分離を考慮したシミュレーションによって材料系を問わず統一的な周期相分離構造の解析が可能であることを示している。これは今後の微細規則配列構造膜の設計手法として重要な知見である。

第5章では、無機ナノ構造体を用いた垂直パターン媒体の作製法について詳細に検討している。微細磁性ドット形成のために、微細孔に直接磁性材料を充填する充填型と非磁性体ドットを形成してその頂上部に磁性体を分離・堆積する被覆型の可能性があるが、充填型では優れた磁気特性が実現できない問題点を指摘して被覆型によって記録再生可能なパターン媒体が得られることを示している。

第6章では、第5章の手法により試作した垂直パターン媒体の記録再生特性について述べている。 1 Tdot/inch^2 で磁性ドットが規則配列した高密度記録媒体に 25 nm 間隔の磁化反転パターンの信号を実際に記録してその再生波形を観測し、作製したパターン媒体が 1 Tbit/inch^2 の可能性を持つことを示している。これは世界的にも最も高い面記録密度の実証であり実用上高く評価できる。

第7章は結論である。

以上、要するに本論文は、自己組織化によるナノ構造体を記録媒体として応用することを検討し、適切な材料系と微細規則配列構造の作製プロセスを明らかにして、記録媒体の試作と記録再生実験を通じて 1 Tbit/inch^2 の高密度垂直磁気記録の可能性を提示したもので、電子工学並びに磁気記録工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。